

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **09302319 A**

(43) Date of publication of application: **25 . 11 . 97**

(51) Int. Cl

**C09J123/16  
C09J153/00  
G09F 3/10**

(21) Application number: **08121984**

(71) Applicant: **KAO CORP**

(22) Date of filing: **16 . 05 . 96**

(72) Inventor: **SATO SHINYA  
SUZUKI MIKIO**

**(54) HOT-MELT ADHESIVE COMPOSITION**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a hot-melt adhesive composition containing a specific ethylene- $\alpha$ -olefin copolymer, styrene-ethylene-propylene-styrene block copolymer and an adhesiveness imparting agent, and suitable for assembling a hygienic material such as a diaper.

SOLUTION: This hot-melt adhesive composition contains

(A) ethylene- $\alpha$ -olefin copolymer having  $\leq 0.90\text{g/cm}^3$  density, (B) a styrene-ethylene-propylene-styrene block copolymer and (C) an adhesiveness imparting agent. Also, it is preferable to contain (D) a plasticizing oil. Further, as the content of each of the components, 10-80wt.% component (A), 1-50wt.% component (B) and 19-60wt.% component (C) are preferable. Also, in the component (B), the content of styrene is preferably 10-35wt.%.

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-302319

(43)公開日 平成9年(1997)11月25日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup> C 09 J 123/16 153/00 G 09 F 3/10	識別記号 J B Y J D J	府内整理番号 F I C 09 J 123/16 153/00 G 09 F 3/10	技術表示箇所 J B Y J D J C
---	------------------------	---	-------------------------------

審査請求 未請求 請求項の数4 OL (全9頁)

(21)出願番号 特願平8-121984

(22)出願日 平成8年(1996)5月16日

(71)出願人 000000918  
花王株式会社  
東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号  
(72)発明者 佐藤 信也  
栃木県芳賀郡市貝町赤羽2606 花王株式会  
社研究所内  
(72)発明者 鈴木 幹雄  
栃木県芳賀郡市貝町赤羽2606 花王株式会  
社研究所内  
(74)代理人 弁理士 羽鳥 修 (外1名)

(54)【発明の名称】 ホットメルト接着剤組成物

(57)【要約】

【課題】 低分子量物のしみ出しがなく、冷却固化後にはタック力が消失し、更には使い捨ておむつ等の衛生用品の組立用の接着剤として用いた場合でも、該使い捨ておむつの風合いを損なうことがないホットメルト接着剤組成物を提供すること。

【解決手段】 密度が0.90 g/cm<sup>3</sup>以下であるエチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体、ステレン-エチレン-プロピレン-ステレンブロック共重合体、及び粘着付与樹脂を具備することを特徴とするホットメルト接着剤組成物。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 密度が0.90 g/cm<sup>3</sup>以下であるエチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレンブロック共重合体、及び粘着付与樹脂を具備することを特徴とするホットメルト接着剤組成物。

【請求項2】 上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体の含有量が10~80重量%であり、上記スチレン-エチレン-プロピレン-スチレンブロック共重合体の含有量が1~50重量%であり、上記粘着付与樹脂の含有量が19~60重量%である請求項1記載のホットメルト接着材組成物。

【請求項3】 上記スチレン-エチレン-プロピレン-スチレンブロック共重合体におけるスチレンの含有量が、10~35重量%である請求項1又は2のいずれかに記載のホットメルト接着剤組成物。

【請求項4】 更に、可塑化オイルを含有する請求項1~3のいずれかに記載のホットメルト接着剤組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、使い捨ておむつ、生理用ナプキン等の衛生用品の組み立て等に好適に用いられるホットメルト接着材組成物に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 一般に、使い捨ておむつや生理用ナプキン等の衛生用品、特に使い捨ておむつは、むれ、かぶれ防止機能を高めるため、(a)多孔質ポリエチレンフィルムをバックシート(外側シート)に使用したものや、(b)立体ギャザーと呼ばれる股ギャザーを使用したものなどが提案されて使用されている。上記(a)の使い捨ておむつは、通常、不織布をトップシート(肌に接する内側シート)に用い、該トップシートをバックシートにホットメルト接着剤を介して接着して構成されている。また、(b)の使い捨ておむつは、立体ギャザー(伸縮性材料を不織布で包み込んだもの)と上記トップシート及び/又はバックシートとをホットメルト接着剤を介して接着して構成されている。そして、上記(a)及び(b)の使い捨ておむつに用いられる上記ホットメルト接着剤には、使い捨ておむつの特性上、①バックシートとして用いられる多孔質ポリエチレンフィルムに接着剤中の低分子量物がしみ出して美観を損なわないこと、②上記立体ギャザーの組み立てに用いる場合には肌に触れてもかぶれないこと、③柔軟でかつ白色もしくは無色であり無臭であること等が重要な性能として要求されている。

【0003】 上記ホットメルト接着剤としては、従来から、合成ゴム質をベースポリマーとした合成ゴム系のホットメルト接着剤が使用されている。この合成ゴム系のホットメルト接着剤は、常温でも粘着性を有し、いわばべたべたした状態のものであるが、該ホットメルト接着

剤に含有させることのできる低分子量物の量が他のポリマーを用いた接着剤に比べて極端に多いため、むれ防止のために使用される多孔質ポリエチレンフィルムからのしみ出しを抑制することができる。しかし、最近では、使い捨ておむつの風合いをさらに柔らかくし、かつコストダウンを図る観点から、使い捨ておむつの構成材料である上記多孔質ポリエチレンフィルム及び不織布の目付(重量)が低減されいるが、上記の合成ゴム系ホットメルト接着剤は、このように基材の目付が低減された場合にまで、シミ出しを抑制することができなかった。このため、従来の合成ゴム系のホットメルト接着剤を用いた使い捨ておむつにおいては、シミ出しにより、美観を損なったり、肌側にしみ出して着用者の肌に触れてかぶれを起こすなどの問題、即ち上記①又は②の性能を満足することができないという問題があった。

【0004】 また、上記のしみ出しを防止する方法として、ホットメルト接着剤における低分子量物の配合量を低減することが考えられているが、このようにすると、接着力が低下するため、所期の接着力が得られないという問題がある。

20 また、繊維間からの接着剤の露出防止のため、接着剤の粘度を高めること等が考えられているが、未だ満足できるレベルに達していない。また、ベタつきの小さい接着剤としては、エチレン-酢ビコポリマー(EVA)やエチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体をベースポリマーとし、これに粘着付与樹脂、ワックス類を添加したEVA系あるいは $\alpha$ -オレフィン系のホットメルト接着剤が、通常使用されている。このホットメルト接着剤は、溶融時に粘着性を有するものであり、ベースポリマーは結晶性を有するため、接着のち冷却すると、

30 ベースポリマーが結晶化(いわばかちかちの状態に固まる)し、タック力を消失する。したがって、冷却後には、接着剤が直接肌に触れてもかぶれないという特性を有している。しかしながら、結晶化した後の風合いが固いため、使い捨ておむつ自体が固くなり、時に着用者の肌が擦れてかぶれるという問題が生じる。

【0005】 また、風合いを柔らかくするためには、液状可塑剤を添加することが考えられているが、上記のベースポリマーを有するホットメルト接着剤に上記液状可塑剤を添加すると、冷却後にもタック力が残り、使用時に肌等に悪影響を及ぼす。

【0006】 要するに、従来提案されていたホットメルト接着剤は、上記①~③の全てを満足するものではなく、上記①~③を全て満足するホットメルト系接着剤の開発が要望されているのが現状である。

【0007】 従って、本発明の目的は、低分子量物のしみ出しがなく、冷却固化後にはタック力が消失し、更には使い捨ておむつ等の衛生用品の組立用の接着剤として用いた場合でも、該使い捨ておむつの風合いを損なうことがないホットメルト接着剤組成物を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】本発明は、永久歪みが50%以下であり且つヒステリシス比が5.0以下であるエチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレンブロック共重合体、及び粘着付与樹脂を含有することを特徴とするホットメルト接着剤組成物を提供することにより上記目的を達成したものである。

## 【0009】

【発明の実施の形態】以下、本発明のホットメルト接着剤組成物について更に詳細に説明する。本発明のホットメルト接着剤組成物は、特定のエチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレンブロック共重合体（以下、「SEPS」と称す）、及び粘着付与剤を具備することを特徴とする。

【0010】本発明のホットメルト接着剤組成物において用いられる上記の特定のエチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体は、その密度が0.90 g/cm<sup>3</sup>以下、好ましくは0.880～0.860 g/cm<sup>3</sup>であるエチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体である。上記密度が0.90 g/cm<sup>3</sup>を超えると、ホットメルト接着剤として、溶融粘度が高くなりすぎる。ここで、上記密度は、通常公知のポリマーの密度測定と同様にして測定されるものである。

【0011】上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体としては、上記密度を満足すれば、特に制限されないが、シクロペントジエニル錯体を触媒として用いて共重合させてなるエチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体が好ましく挙げられる。

【0012】上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体において、エチレンと共に重合させる $\alpha$ ・オレフィンとしては、炭素数が3～30の $\alpha$ ・オレフィン、具体的には例えば、プロピレン、1-ブテン、1-ペントン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-ヘプテン、4-メチルペントン-1、4-メチルヘキセン-1、4、4-ジメチルペントン-1、オクタデセン等が挙げられる。これらの中でも1-ヘキセン、1-オクテン、1-ヘプテン、4-メチルペントン-1が好ましく用いられる。

【0013】また、上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体において、エチレンと $\alpha$ ・オレフィンとを共重合させる際に触媒として用いられる上記シクロペントジエニル錯体としては、次式（I）に示される化合物等が挙げられる。

【0014】ML<sub>1</sub> . . . (I)

〔式中、Mは、Zr、Ti、Hf、V、Nb、TaおよびCrからなる群から選ばれる遷移金属を示し、Lは、該遷移金属に配位する配位子であり、シクロペントジエニル骨格を有する基、炭素数1～12の炭化水素基、炭素数1～12のアルコキシ基、炭素数1～12のアリロキシ基、炭素数1～12のトリアルキルシリル基、S

O<sub>x</sub>R基（ただしRはハロゲンなどの置換基を有していてもよい炭素数1～8の炭化水素基）、ハロゲン原子または水素原子を示し、xは上記遷移金属の原子価と同じ数である。但し、上記Lは、複数個配位している場合にはそれぞれ異なる基であっても良いが、少なくとも1つはシクロペントジエニル骨格を有する基である。即ち、上記xが1の場合には、上記Lはシクロペントジエニル骨格を有する基であり、上記xが2以上の場合には、複数個の上記Lの内少なくとも一つは、シクロペントジエニル骨格を有する基である。】

【0015】上記のシクロペントジエニル骨格を有する基としては、たとえば、シクロペントジエニル基、メチルシクロペントジエニル基、ジメチルシクロペントジエニル基、トリメチルシクロペントジエニル基、テトラメチルシクロペントジエニル基、ペンタメチルシクロペントジエニル基、エチルシクロペントジエニル基、メチルエチルシクロペントジエニル基、プロピルシクロペントジエニル基、メチルプロピルシクロペントジエニル基、ブチルシクロペントジエニル基、メチルブチルシクロペントジエニル基、ヘキシルシクロペントジエニル基、などのアルキル置換シクロペントジエニル基；あるいはインデニル基、4,5,6,7-テトラヒドロインデニル基、フルオレニル基などを例示することができる。また、これらの基は、ハロゲン原子、トリアルキルシリル基などで置換されていてもよい。

【0016】上記のシクロペントジエニル骨格を有する基としては、上述の例示したものの中でも、アルキル置換シクロペントジエニル基が特に好ましい。

【0017】また、上記一般式（I）で表される化合物が、シクロペントジエニル骨格を有する基を2個以上含む場合には、そのうち2個のシクロペントジエニル骨格を有する基同士は、エチレン、プロピレンなどのアルキレン基；イソプロピリデン、ジフェニルメチレンなどの置換アルキレン基；シリレン基またはジメチルシリレン基、ジフェニルシリレン基、メチルフェニルシリレン基などの置換シリレン基などを介して結合されていてもよい。

【0018】また、上記の炭素数1～12の炭化水素基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基などが挙げられ、より具体的には、アルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基などが例示され、シクロアルキル基としては、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などが例示され、アリール基としては、フェニル基、トリル基などが例示され、アラルキル基としては、ベンジル基、ネオフィル基などが例示される。また、アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基などが例示され、アリーロキシ基としては、フェノキシ基などが例示され、ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素などが例示される。

【0019】また、上記SO<sub>3</sub>R基としては、p-トルエンスルホナト基、メタンスルホナト基、トリフルオロメタンスルホナト基などが例示される。

【0020】このようなシクロペントジエニル骨格を有する基を含む化合物としては、たとえば遷移金属の原子価が4である場合、より具体的には下記式(II)で示される。

【0021】

R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup>, M . . . (II)

[式中、Mは上記遷移金属であり、R<sup>2</sup>は、シクロペントジエニル骨格を有する基(配位子)であり、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>は、それぞれシクロペントジエニル骨格を有する基、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、トリアルキルシリル基、SO<sub>3</sub>R基、ハロゲン原子または水素原子であり、kは1以上の整数であり、k+1+m+n=4である。]

【0022】また、本発明では上記式(II)において、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>のうち少なくとも2個、例えばR<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>がシクロペントジエニル骨格を有する基(配位子)である化合物が好ましく用いられ、これらのシクロペントジエニル骨格を有する基(例えばR<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>)は、上述の如く結合されていてもよい。

【0023】以下に、Mがジルコニウムである上記化合物について具体的な化合物を例示する。ビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(インデニル)ジルコニウムジプロミド、ビス(インデニル)ジルコニウムビス(p-トルエンスルホナト)ビス4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、エチレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、エチレンビス(インデニル)ジルコニウムジプロミド、エチレンビス(インデニル)ジメチルジルコニウム、エチレンビス(インデニル)ジフェニルジルコニウム、エチレンビス(インデニル)メチルジルコニウムモノクロリド、エチレンビス(インデニル)ジルコニウムビス(メタンスルホナト)、エチレンビス(インデニル)ジルコニウムビス(p-トルエンスルホナト)、エチレンビス(インデニル)ジルコニウムビス(トリフルオロメタンスルホナト)、エチレンビス(4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロリド、イソプロピリデン(シクロペントジエニル-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、イソプロピリデン(シクロペントジエニル-メチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス(メチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス(ジメチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス(トリメチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス(ヘキシルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(トリメチルシリルジクロペントジエニル)

ド、ジメチルシリレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス(インデニル)ジルコニウムビス(トリフルオロメタンスルホナト)、ジメチルシリレンビス(4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス(シクロペントジエニル-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、ジフェニルシリレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、メチルフェニルシリレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムジプロミド、ビス(シクロペントジエニル)メチルジルコニウムモノクロリド、ビス(シクロペントジエニル)エチルジルコニウムモノクロリド、ビス(シクロペントジエニル)シクロヘキシルジルコニウムモノクロリド、ビス(シクロペントジエニル)フェニルジルコニウムモノクロリド、ビス(シクロペントジエニル)ベンジルジルコニウムモノクロリド、ビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムモノクロリドモノハイドライド、ビス(シクロペントジエニル)メチルジルコニウムモノハイドライド、ビス(シクロペントジエニル)ジメチルジルコニウム、ビス(シクロペントジエニル)ジフェニルジルコニウム、ビス(シクロペントジエニル)ジベンジルジルコニウム、ビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムメトキシクロリド、ビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムエトキシクロリド、ビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムビス(メタンスルホナト)、ビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムビス(p-トルエンスルホナト)、ビス(シクロペントジエニル)ジルコニウムビス(トリフルオロメタンスルホナト)、ビス(エチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(メチルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(ジメチルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(ジメチルシクロペントジエニル)ジルコニウムエトキシクロリド、ビス(ジメチルシクロペントジエニル)ジルコニウムエトキシクロリド、ビス(ジメチルシクロペントジエニル)ジルコニウムビス(トリフルオロメタンスルホナト)、ビス(エチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(メチルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(メチルエチルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(プロピルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(メチルプロピルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(ブチルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(メチルブチルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(メチルブチルシクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(メチルブチルシクロペントジエニル)ジルコニウムビス(メタンスルホナト)、ビス(トリメチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(テトラメチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(ペンタメチルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(ヘキシルジクロペントジエニル)ジルコニウムジクロリド、ビス(トリメチルシリルジクロペントジエニル)

ジルコニウムジクロリド。

【0024】なお、上述の例示した化合物において、ジメチルシクロペンタジエニル等のシクロペンタジエニル環の二置換体は1, 2-および1, 3-置換体を含み、ジメチルシクロペンタジエニル等の三置換体は1, 2, 3-および1, 2, 4-置換体を含む。またプロピル、ブチルなどのアルキル基はn-、i-、sec-、tert-などの異性体を含む。また、上記化合物としては、上記Mがジルコニウムである上述の化合物において、ジルコニウムを、チタン、ハフニウム、バナジウム、ニオブ、タンタルまたはクロムに置換したシクロペンタジエニル錯体も例示される。

【0025】また、上記シクロペンタジエニル錯体は、その使用に際しては、単独又は混合物とし用いることができる。また、炭化水素あるいはハロゲン化炭化水素に希釈して用いてもよい。特に、本発明においては、上記シクロペンタジエニル錯体として、中心の金属原子がジルコニウムであり、少なくとも2個のシクロペンタジエニル骨格を有する基を配位子としたジルコノセン化合物が好ましく用いられる。

【0026】また、上記シクロペンタジエニル錯体は、通常のアルミノオキサン化合物又は該シクロペンタジエニル錯体と反応して安定なアニオンを形成する化合物と併用することもできる。

【0027】また、本発明におけるシクロペンタジエニル錯体触媒としては、特開平4-253711号公報、特開平4-279592号公報、特表平6-503585号公報、特開平3-188092号公報又は特開平2-84407号公報に記載されている重合触媒を用いることができる。

【0028】上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体におけるエチレンと $\alpha$ ・オレフィンとの配合割合は、エチレンが好ましくは40~98重量%、 $\alpha$ ・オレフィンが好ましくは60~2重量%である。

【0029】上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体は、エチレンと $\alpha$ ・オレフィンとを、シクロペンタジエニル錯体の存在下に、100~3,000kg/cm<sup>2</sup>、好ましくは300~2,000kg/cm<sup>2</sup>、125~250℃、好ましくは150~200℃の温度で高圧イオン重合法により重合して、製造することができる。特に、上記シクロペンタジエニル錯体と上記アルミノオキサン化合物とを併用して重合するには、特開昭61-130314号公報、同60-35006号公報、同58-19309号公報、同60-35008号公報、特開平3-163088号公報等に記載の方法に従って、また、上記シクロペンタジエニル錯体及び該シクロペンタジエニル錯体と反応して安定なアニオンを形成する化合物を併用して重合するには、ヨーロッパ特許第277,004号明細書、国際公開WO92/01723号公報等に記載されている高圧イオン重合法に従つ

て、重合することができる。

【0030】また、上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体のMFR (JIS K-7210; 190℃、2.16kg荷重で測定) は、好ましくは0.5~500g/10分である。

【0031】また、上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体は、その永久歪みが好ましくは50%以下、更に好ましくは0~30%であり、且つヒステリシス比が好ましくは5.0以下、更に好ましくは1.0~3.5であるが望ましい。一方、上記永久歪みが50%を超える、又は上記ヒステリシス比が5.0を超えると、ホットメルト接着剤として溶融粘度が高くなる傾向があり好ましくない。

【0032】上記永久歪み及び上記ヒステリシス比は、それぞれ、下記の如くして測定されるものである。永久歪みの測定法；下記のヒステリシス比の測定法と同様にして、試料を100%延伸した後初期のチャック間距離とした際の試料の長さを測定し、100%延伸した場合の初期長さ（初期のチャック間距離）に対する弛緩できない長さ（初期長さよりも伸びて長くなった部分の長さ）の割合（%）を求め、これを永久歪みとした。

ヒステリシス比の測定法；各試料の伸縮性を調べる為、積算装置付伸長試験機を使って、ヒステリシス比を測定した。即ち、上記弾性部材により幅25mmの試料を作成し、該試料を上記試験機にチャック間距離が100mmとなるように固定し、次いで、各試料を300mm/minの速度で100%延伸して延伸曲線を作成し、引き続き同じ速度で緩めてチャック間が初めの長さの100mmになった所で緩めるのを止めて弛緩曲線を作成し、各々延伸曲線下及び弛緩曲線下の面積を測定し、これらを次式に代入して、ヒステリシス比を算出した。

ヒステリシス比=延伸曲線下の面積/弛緩曲線下の面積

【0033】また、本発明において用いられる上記SEPSは、ポリマー中に含有することのできる低分子量物が極めて多いため、該低分子量物のしみ出しを抑制することができる成分であり、両端のスチレンポリマーブロックの間にエチレン構造とプロピレン構造とが混在してなる構造を有するものである。また、上記SEPSは、エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体と化学構造的に同じ骨格を有するため、他の合成ゴム、例えばスチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体(SIS)、スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体(SBS)、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン共重合体(SEBS)等に比して、上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体に対する良好な相溶性を有し、得られる接着剤組成物の低温接着性を大幅に改善することができる。

【0034】上記SEPSにおけるスチレンの含有量は、10~35重量%の範囲内とするのが好ましい。上記含有量が10重量%未満であると、冷却後にもタック

力が残ってしまい、35重量%を超えると、低温接着性が低下する傾向がみられるので、好ましくない。

【0035】上記S E P Sは、例えば、両端のスチレンポリマーブロックの間がイソプレンポリマーブロックであるスチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体のイソプレンポリマー部分を水素添加する等して得ることができる。

【0036】また、本発明において用いられる上記粘着付与樹脂としては、通常のホットメルト接着剤組成物に用いられるものであれば特に制限されないが、例えば、水素添加された芳香族系石油樹脂、水素添加された脂肪族系石油樹脂、水素添加されたテルペン系樹脂等の水素添加された樹脂等が、水素添加することによって化学構造上、二重結合が極端に少なくなることから、熱に対する安定性が良好で、経時劣化による色相の変化や臭気の問題がないため、特に好ましく用いられる。また、このような粘着付与樹脂は、上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体及びS E P Sに対する相溶性に優れているため、その使用によって接着性が阻害されることはない。なお、上記粘着付与樹脂の軟化温度は、特に限定されるものではなく、常温で固体であっても液体であってもよいが、液体のものが、可塑剤としての効果を有することから好ましい。

【0037】本発明のホットメルト接着剤組成物において、上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体の含有量は、好ましくは10~80重量%、更に好ましくは15~50重量%であり、上記スチレン-スチレン-ブロピレン-スチレンブロック共重合体の含有量は、好ましくは1~50重量%、更に好ましくは5~30重量%であり、上記粘着付与樹脂の含有量は、好ましくは19~60重量%、更に好ましくは30~50重量%である。尚、ここで上記含有量は、後述する添加剤を含まない成分の合計量を100とした時の%である。具体的には、上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体、上記S E P S、上記粘着付与樹脂及び後述する必要に応じて用いられる可塑剤の合計量を100としたときの重量%である。上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体の配合量が、10重量%未満であると、ホットメルト接着剤の凝集力が低くなり好ましくない。また、80重量%を超えると、ホットメルト接着剤の溶融粘度が高くなり過ぎ好ましくない。上記S E P Sの配合量が、1重量%未満であると、相溶性が悪化し、逆に50重量%を超えると、低温接着性及び風合いが悪化する場合があるので好ましくない。上記粘着付与樹脂の配合量が60重量%を超えると、風合いが硬くなるとともに低温接着性が悪化し、19重量%未満であると、被着体に対する濡れ性が低下して初期接着力が悪くなる場合があるので好ましくない。

【0038】また、本発明のホットメルト接着剤組成物には、上記エチレン- $\alpha$ ・オレフィン共重合体、上記S

E P S、上記粘着付与樹脂以外に、必要応じて可塑剤を配合してもよい。上記可塑剤としては、ホットメルト接着剤組成物に使用されるものであれば特に限定するものではなく従来公知のものが用いられ、例えば、可塑化オイル等が挙げられる。このような可塑剤は、液状であってもまた固体状であっても差し支えない。上記可塑剤を用いる場合の該可塑剤の配合量は、接着剤の固化時間及び固化後のタック力という観点から、好ましくは1~40重量%、更に好ましくは5~30重量%である。

【0039】更に、本発明のホットメルト接着剤組成物には、上記の各成分に加えて更に、従来公知の酸化防止剤、安定剤、充填剤及び顔料等の添加剤を必要に応じて適宜選択して配合することができ、それぞれ単独でもしくはそれぞれ混合して用いることができる。さらに、上記添加剤に加えて各種の熱可塑性高分子化合物を添加することもできる。

【0040】本発明のホットメルト接着剤組成物は、例えば上記各原料を、溶融各館混合釜に入れて加熱混合する等して、使用に供することができる。

【0041】本発明のホットメルト接着剤組成物は、使い捨ておむつや生理用ナプキン等の製造用（具体的には、トップシートとバックシート等各部材の貼り合せ用）の接着剤として有用である他、製本用、ダンボール製造用等として好適である。

#### 【0042】

【実施例】次いで、実施例により本発明を更に具体的に説明するが本発明はこれらに限定されるものではない。尚、実施例における各種物性の測定方法は以下の通りである。

【0043】<接着性>紙おむつに主として使用されているポリエチレンフィルム（具体的には花王製透湿シート35g/m<sup>2</sup>）と不織布（具体的にはポリエチレンテレフタレート（P E T, 芯）/ポリエチレン（P E, 鞘）芯鞘繊維からなる坪量20g/m<sup>2</sup>の不織布）とを用意した。そして、該ポリエチレンフィルムと不織布とを実施例で得られたホットメルト接着剤組成物を用いて、塗布温度120~150℃、塗布量0.05g/m<sup>2</sup>でピード状に塗布して、接着して試験片を得た。得られた試験片を20℃の温度雰囲気下に24時間放置したのち取り出し、手で接着された両者を引き剥がし、材料破断の場合を○、界面剥離の場合を×、その中間を△として評価した。また、同様にして、不織布同士を接着した場合についても評価した。

【0044】<タック力>厚さ50μmのポリエステルフィルムに実施例で得られたホットメルト接着剤組成物を厚さ50μmで塗布した。これを25mm×125mmに切断し、この切断されたものを接着剤組成物が塗布された面を外側にしてループ状にして、これをサンプルとした。このサンプルを20℃雰囲気下、300mm/m inで25mm巾の被着体（ポリエチレン板）に接着

させ、次いで、同スピードで引っ張り上げたときのサンプルと被着体とが剥離する際の力を測定した。尚、測定は、塗布直後と塗布1時間後との2回行い、それぞれ、5個のサンプルについての平均を測定値とした。

【0045】<硬度>20°C温度雰囲気下で直径65mm、深さ12mmのリングに溶融したホットメルト接着剤組成物を流し込み冷却固化後所定の硬度計で測定した（JIS K6301に準拠）。

<しみ出し性>厚さ50mmのポリエステルフィルムにホットメルト接着剤組成物を厚さ50μmで塗布し、これをテスト試料として、市販の30g/cm<sup>2</sup>の多孔質ポリエチレンフィルムと張り合わせ、60°Cで1週間放置した。そして、その後のしみ出し度合いを目視で判定した。全くしみ出さずフィルムの隠蔽性が確保されている場合を○、完全にしみ出した場合を×、その中間を△とした。

【0046】<熱安定性>

①粘度低下率

180°Cの温度雰囲気下で実施例で得られたホットメルト接着剤組成物を72時間放置し、その前後の粘度を測定して粘度低下率を算出し、これを熱安定性の指標とした。算出式は、下記のとおりである。

\*

10

\*粘度低下率  $[(V_0 - V) / V_0] \times 100$  (%)

$V$  : 180°C、72時間放置後のホットメルト接着剤組成物の160°Cでの溶融粘度。

$V_0$  : 热履歴を受ける前のホットメルト接着剤組成物の160°Cでの溶融粘度。

②色相

180°C温度雰囲気下に72時間放置し、その時点での組成物の色相を目視で判定した。完全に無色あるいは白色の場合を○、やや着色のある場合を△、明らかに着色のある場合を×とした。

③臭気

180°C温度雰囲気下に72時間放置し、その時点での組成物の臭気を官能テスト（パネラー10名）によって評価した。無臭の場合を○、やや臭気のある場合を△、明らかに臭気のある場合を×とした。

【0047】[実施例] [表1]に示す配合で各成分を混合し、更に150°Cで溶融混練して、各ホットメルト接着剤組成物を調製した。得られたホットメルト接着剤組成物について、上述の各評価を行った。その結果を

20 [表2]に示す。

【0048】

【表1】

		実施例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
エチレン- $\alpha$ -オレフィン共重合体 (MFR=3.00 g/cm <sup>2</sup> 、密度0.870 g/ml)		イソブリ-1・ブチル基 イソブリ-1・ブチル基 イソブリ-1・ブチル基 イソブリ-1・ブチル基 イソブリ-1・ブチル基 イソブリ-1・ブチル基 イソブリ-1・ブチル基 イソブリ-1・ブチル基								
		2.0	3.5	2.0	1.0	1.5	3.0	3.0	3.0	3.5
粘着付 与樹脂 組	水添テルペン系樹脂 軟化点100℃	「クリアロンP-105」(住友化学社製)	-	2.5	-	1.0	-	-	4.0	-
	水添芳香族系石油樹脂 軟化点100℃	「アルコンP-100」(壳牌化学社製)	4.5	-	1.0	2.5	4.0	-	-	1.0
	水添脂肪族系石油樹脂 軟化点100℃	「イースタックH-100W」(-ストラタ社製)	-	-	3.0	-	-	4.5	-	3.5
S E P S 成	「セブトン 2023」(クラレ社製) Melt Index-1g/10min. ステレン含有量-13%								-	-
	「セブトン 2043」(クラレ社製) Melt Index-17g/10min. ステレン含有量-13%								-	-
	可塑剤 「クリストール352」(エクソン社製)								1.5	1.0
酸化防止剤 紫外線吸収剤	「イルガノックス1010」(チバガイギー社製)								-	1.0
	「チヌビンP」(チバガイギー社製)								0.3	0.3
合計		100.8	100.8	100.8	100.8	100.8	100.8	100.8	100.8	100.8

尚、表中の配合量(数値)は、それぞれ重量部である。

			実施例								
			1	2	3	4	5	6	7	8	9
溶融粘度 (160°C, cps)		1000	1万	7000	5000	3000	5万	4万	2.5万	3万	
軟化点 (°C)		75	84	80	78	76	98	95	87	90	
接着性	PE+NW*	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
(20°C)	NW+NW	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
タック力 (20°C)	塗布直後	500	350	400	450	470	250	265	300	290	
	1時間後	500	340	400	440	460	250	260	300	285	
しみ出し性 (60°C×1週間後)		○	○	○	○	○	○	○	○	○	
熱安定剤	180°C×72時間後の粘度低下率 (at 160°C)	10	6	7	8	9	2	3	5	4	
	180°C×72時間後の色相	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
	180°C×72時間後の臭気	○	○	○	○	○	○	○	○	○	

\*表中、PEは、ポリエチレンフィルムを示し、NWは、不織布を示す。

### 【0050】

【発明の効果】本発明のホットメルト接着剤組成物は、低分子量物のしみ出しがなく、冷却固化後にはタック力\*

\*が消失し、更には使い捨ておむつ等の衛生用品の組立用の接着剤として用いた場合でも、該使い捨ておむつの風合いを損なうことがないものである。